

氏 名	安田 健一郎
学 位 の 種 類	博士 (理学)
学 位 記 番 号	博甲第 9 9 7 号
学位授与の日付	平成 20 年 3 月 22 日
学位授与の要件	課程博士(学位規則第 4 条第 1 項)
学位授与の題目	保障措置のための放射線計測システムの開発
論文審査委員 (主査)	奥野 正幸 (自然科学研究科・教授)
論文審査委員 (副査)	山本 政儀 (環日本海域環境研究センター・教授), 中西 孝 (自然科学研究科・教授), 井村 久則 (自然科学研究科・教授), 横山 明彦 (自然科学研究科・准教授)

## Abstracts

In order to monitor actinide nuclides in nuclear fuel cycle facilities, the author has been developing several types of phoswich probes for simultaneous counting of alpha-ray and other radiations. Furthermore, the author has applied a multi-parameter technique to several phoswich probes and analyzed the output data in three dimensions, viz., event number, pulse height and rise time. Effective and simultaneous counting of alpha- and beta(gamma)-rays and neutrons was consequently made possible with the two types of phoswich: ZnS(Ag)/<sup>6</sup>Li glass and ZnS(Ag)/anthracene.

On the other hands, JAEA built a clean room facility for analyzing ultra-trace amounts of nuclear materials in safeguards environmental samples. To eliminate the samples with excessive amounts of radioactive materials from the facility, the author needs to roughly estimate amounts of actinides with non-destructive analysis. In this estimation, it is very inefficient to measure the actinides by using a HPGe detector because photopeaks of actinides are frequently interfered by Compton continuum which is caused by gamma activity in the sample. For suppressing the Compton scattering signals, the author has examined the feasibility of two HPGe detectors which were symmetrically surrounded with NaI(Tl) guard detectors.

To avoid cross-contamination among the samples and contamination of the clean rooms, radioactive materials in the samples to be introduced into the CLEAR facility will be limited to a certain amount. For this purpose, the author has examined the feasibility of Imaging-plate method, which is suitable for determination on distribution of low-level radioactivity in the samples.

我が国では、核兵器不拡散条約に基づき、核物質が核兵器やその他の核爆発装置に転用されていないことを確認するため、国内保障措置として国による保障措置検査が、法令で義務化されている。また、国内保障措置の状況を IAEA に報告するとともに、査察を受け入れることにより、国際保障措置が実施されている。放射線計測法は、非破壊で核物質の放射能測定やその場(in-situ)測定などが可能であることから、検査や査察の際、核物質の計量管理や監視など、保障措置の分野で広く適用されている。しかし、これまで再処理工場などでグローブボックス内や配管の周辺を測定する際に、取り扱いの簡便な小型・軽量の検出器が望まれていた。

また、近年のイラクや北朝鮮における核疑惑を契機に、従来の保障措置をさらに強化した保障措置システムが、IAEA により実施されている。これは、核関連施設において査察官が拭き取り試料を採取し、それに含まれる極微量核物質や核分裂片等进行分析することにより未申告原子力活動を検知しようとするものである。放射線測定によ

って短時間で高感度な測定を行うためには、バックグラウンドを低減させることが、大きな課題であった。

本研究では、新型検出器の開発や従来の検出法の改良により、適用範囲を広げるとともに迅速かつ正確な測定ができる以下の二つの計測システムを開発した。

### 1. ホスウィッチ検出器を用いたマルチパラメータ計測システムの開発

東海村や六ヶ所村に建設されている再処理工場では、硝酸ウラニル溶液などの核燃料再処理プロセス溶液を大量に扱っている。そこで、計量管理のみならず、工程・安全管理の観点からも、プロセス溶液より放出される放射線をモニタリングし、溶液の濃度変動を確認する必要がある。また、この濃度変動情報は、工場を停止することなく核物質の在庫管理を行う近実時間計量管理という手法への適用も検討されている。

従来、これらのモニタリングには、放射線によって蛍光を発するシンチレータ検出器が適用されてきたが、単一のシンチレータではプロセス溶液から放出されるさまざまな種類の放射線を独立して計測することは困難であった。本研究では、プロセス溶液から放出される $\alpha$ 線及び $\beta(\gamma)$ 線を1個の検出器で同時に効率よく測定するため、直接モニタリング可能な浸漬型ホスウィッチ検出器を開発した<sup>14)</sup>。ホスウィッチ検出器とは、出力される信号パルスの波高(エネルギー)特性や波形(時間)特性の異なる複数のシンチレータを光学的に接合することにより、複数の放射線を弁別し相互に妨害することなく同時計測を可能とする検出器である。図1に、我々が開発した代表的ホスウィッチであるZnS(Ag)/NE102A から成る $\alpha$ 及び $\beta(\gamma)$ 線同時計測用浸漬型検出器を示す。一般にプロセス溶液は、硝酸溶液や有機溶媒等の腐食性であるため、ZnS(Ag)やプラスチックシンチレータNE102AをAu蒸着マイラーで保護して使用した。

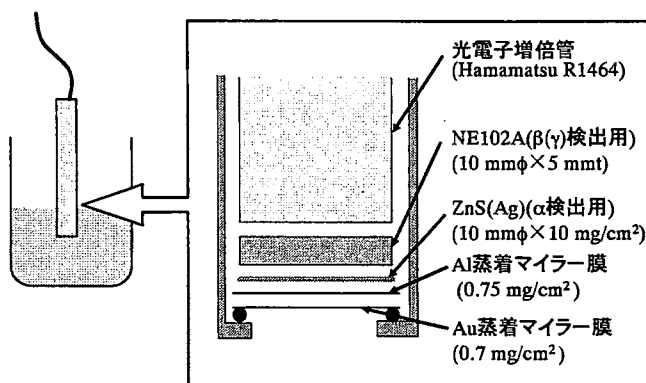


図1：ZnS(Ag)/NE102A 浸漬型ホスウィッチ検出器

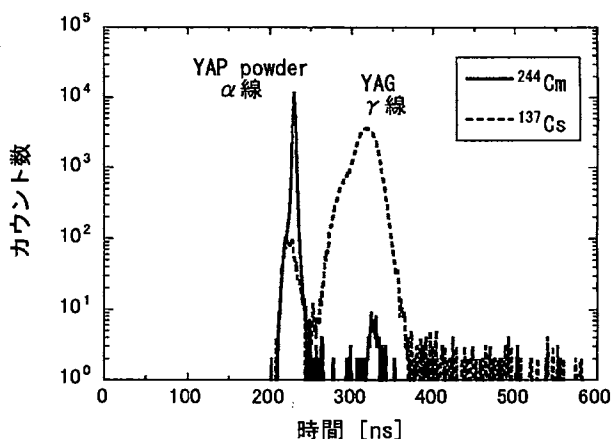


図2：YAP/YAG ホスウィッチ検出器による<sup>244</sup>Cm(3 kBq)及び<sup>137</sup>Cs(50 kBq)の測定結果

また、耐腐食性の無機シンチレータである YAG(Ce)や YAP(Ce)を適用したホスウィッチ検出器も開発し、性能評価を行った<sup>5)</sup>。さらに、粉末化した YAP(Ce) ( $\alpha$ 線検出用)を、YAG(Ce) ( $\beta(\gamma)$ 線検出用)と組み合わせたホスウィッチ検出器が、 $^{244}\text{Cm}$  の  $\alpha$ 線と  $^{137}\text{Cs}$  の  $\beta(\gamma)$ 線を弁別し、実際の使用にあたり有望であることを明らかにした(図2参照)。次に、ホスウィッチ検出器から出力される蛍光を光ファイバーで光電子増倍管に伝送することによって、通常 30 mm  $\phi$  程度であった検出部を 5 mm  $\phi$  程度まで小型・軽量化し、グローブボックス内や配管の周辺で使用可能な検出器の開発に成功した<sup>6)</sup>。

また、プルトニウムを含むプロセス溶液では、プルトニウム核種の自発核分裂や ( $\alpha, n$ ) 反応によって放出される中性子

も工程管理や臨界安全性の観点から重要な測定対象となる。そこで、 $\beta(\gamma)$ 線及び熱中性子 ( $n_{th}$ ) 検出用シンチレータである  $^6\text{Li}$  ガラスシンチレータ GS2 を一要素とした ZnS(Ag)/GS2 ホスウィッチ検出器の適用を検討した。波形弁別のみでは、 $\beta(\gamma)$ 線及び  $n_{th}$  を完全に分離することは困難であったが、マルチパラメータ法を適用することにより、複数の放射線 ( $\alpha$ ,  $\beta(\gamma)$ ,  $n_{th}$ ) を完全に弁別することに成功した(図3参照)<sup>7)</sup>。

これらの成果により、プロセス溶液中に含まれる  $\alpha$  放射体である核物質や  $\beta(\gamma)$  放射体である核分裂片等の濃度だけでなく、核燃料溶液を取り扱う上で重要な中性子まで相互の妨害無く、正確なモニタリングが可能となった。

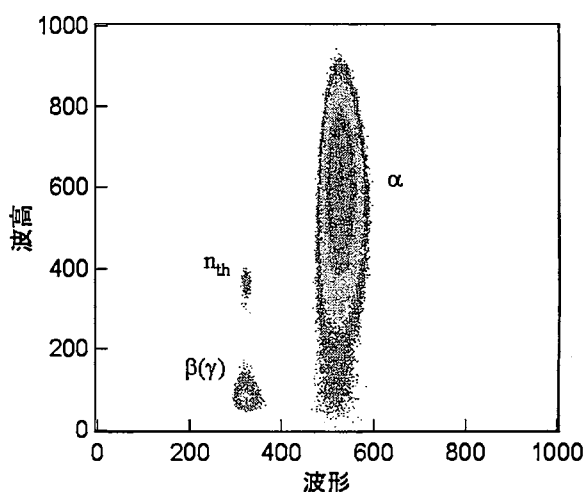


図3：マルチパラメータ法を適用した ZnS(Ag)/GS2 ホスウィッチ検出器による  $\alpha$ 線、 $\beta(\gamma)$ 線及び  $n_{th}$  の測定結果

## 2. アンチコンプトン法及びイメージングプレートを用いた低レベル放射線測定システムの開発

IAEA の査察官により採取された拭き取り試料は、IAEA のネットワーク分析所に送られ、試料中に含まれる極微量核物質やその娘核種、原子炉の運転によって生成される核分裂片及びマイナーアクチノイド等が分析される。この分析は、我が国では日本原子力研究開発機構の高度環境分析研究棟において行われている<sup>8-9)</sup>。高度環境分析研究棟は、核物質の使用が可能な管理区域内にクリーンルームを有しており、自然界に存在する天然ウランなどのバックグラウンドの影響を低減させた環境で、試料の調整や分析が可能となっている。このような極微量の核物質の分析には、試料全体を溶解・化学分離の後、ICP-MS(誘導結合プラズマ質量分析装置)などでウランやプルトニウムの同位体比を測定するバルク分析法や、試料上に捕集された粒子状の核物質を回収し粒子ごとに SIMS(二次イオン質量分析装置)や TIMS(表面電離型質量分析装置)を用いて同位体比を求めるパーティクル分析法が適用されている。しかし、核物質の娘核種や核分裂片、マイナーアクチノイドの分析では、ほとんどの核種の半減期が数 100 年前後からそれ未満と短いことから放射線計測が必須となる。本研究では、従来高エネルギー  $\gamma$  線計測分野に用いられてきたアンチコンプトン法を低エネルギー  $\gamma$  線計測に適用した低レベル  $\gamma$  線測定装置を開発した。本装置により、ウラン・プルトニウムからの X 線や、 $^{235}\text{U}$  及び  $^{238}\text{U}$  からの  $\gamma$  線領域 (<200 keV) におけるバックグラウンドの計数率を 1 桁下げることに成功した(図4参照)<sup>10)</sup>。これにより、1 週間測定の場合、天然ウランの検出下限値として  $\sim 1 \mu\text{g}$  を達成した。

IAEA の査察で用いられている拭き取り試料は 10 cm 角の面状試料である。パーティクル分析法において、この試料上の核物質の付着位置及び放射能強度が、核物質粒子を迅速に拾い出すために重要な情報となる。そこで、イメージングプレートを用いた拭き取り試料上の放射性物質分布測定法を検討し、放射能分布イメージの取得に成功した。この分布イメージは、放射線線量に相関があるため、 $\alpha$  線、 $\beta$  ( $\gamma$ ) 線及び中性子に感度をもつ。そこで、単一の放射線に対する感度を評価するために、 $\beta$  ( $\gamma$ ) 放出核種を用いて検量線を作成した。図 5 に、塩化カリウム試薬中に含まれる  $\beta$  ( $\gamma$ ) 放出核種  $^{40}\text{K}$  を測定した際に得られた検量線を示す<sup>11)</sup>。これにより、試料上に分布する放射性物質の位置及び  $\beta$  ( $\gamma$ ) 放出核種相当の放射能を把握することが可能となり、パーティクル分析法で粒子回収の際に有用な位置や量を特定する作業効率が改善された。

このように保障措置を主目的とした放射線計測システムを開発し、実用可能であることが示された。さらに、開発した計測システムは、低レベル放射能測定が可能であることから、通常の地上環境では測定困難であった環境放射能測定や関連する研究への応用が期待されている。その一例として、チェルノブイル土壤中のホットパーティクル検出<sup>12)</sup>や長崎市湖底堆積物における  $^{137}\text{Cs}$  の深度分布測定<sup>13-14)</sup>がある。

## References

- 1) "Phoswich Detectors for Simultaneous Counting of Alpha-, Beta(Gamma)-rays and Neutrons", S. Usuda, S. Sakurai, K. Yasuda, Nucl. Instr. Methods, A388, p. 193-198 (1997).
- 2) "Development of Phoswich Detectors for Simultaneous Counting of Alpha Particles and Other Radiations (Emitted from Actinides)", S. Usuda, K. Yasuda, S. Sakurai, Appl. Radiat. Isot., 49, p. 1131-1134 (1998).
- 3) "Simultaneous Counting of Radiation Emitted from Actinides with Improved Phoswich Detectors by Applying an Optical Filter", S. Usuda, K. Yasuda, S. Sakurai, J. Alloys Comp., 271-273, p. 58-61 (1998).
- 4) "Application of a Phoswich Detector for Simultaneous Counting of Alpha and Beta(Gamma) Rays to a Rotating Drum-cell Type Monitor", S. Usuda, K. Yasuda et al., INMM39th Annual Meeting, Jul. 26-30, 1998, Florida, USA.
- 5) "Properties of a YAP Scintillator as Alpha-ray Detector", K. Yasuda, S. Usuda, H. Gunji, Appl. Radiat. Isot., 52, p. 365-368 (2000).

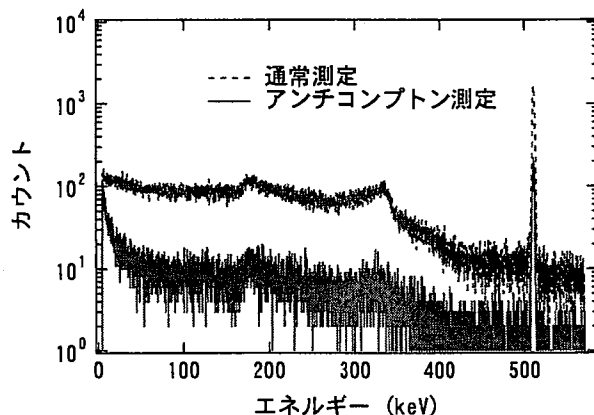


図 4 : アンチコンプトン法の適用によるバックグラウンドの変化

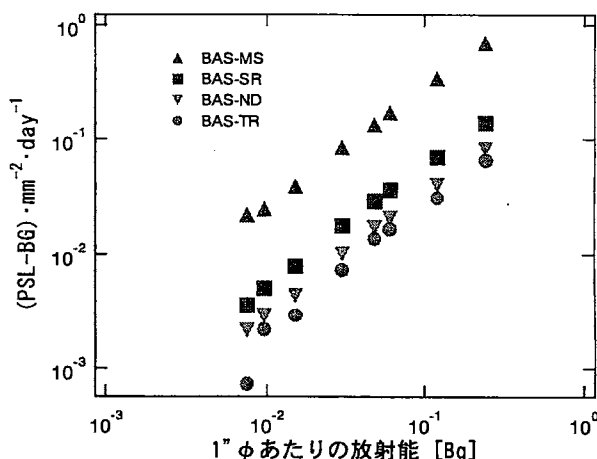


図 5 : 各種イメージングプレートで KCl 中の  $^{40}\text{K}$  を測定した際に得られた検量線

- 6) "Development of Scintillation-light-transmission Type Phoswich Detector for Simultaneous Alpha- and Beta(Gamma)-ray Counting", K. Yasuda, S. Usuda, H. Gunji, IEEE Trans. Nucl. Sci., 47 (4), p. 1337-1340, (2000).
- 7) "Simultaneous Counting of Alpha, Beta (Gamma) Rays and Neutrons with Phoswich Detectors Applied a Dual-parameter Technique", K. Yasuda, S. Usuda, H. Gunji, IEEE Trans. Nucl. Sci., 48 (4), p. 1162-1164 (2001).
- 8) "Development of Analytical Techniques for Ultra Trace Amounts of Nuclear Materials in Environmental Samples Using ICP-MS for Safeguards", M. Magara, Y. Hanzawa, F. Esaka, Y. Miyamoto, K. Yasuda et al., Appl. Radiat. Isot., 53, p.87-90 (2000).
- 9) "Establishment of a Clean Laboratory for Ultra Trace Analysis of Nuclear Materials in Safeguards Environmental Samples", Y. Hanzawa, M. Magara, K. Watanabe, F. Esaka, Y. Miyamoto, K. Yasuda, K. Gunji, S. Sakurai, S. Takano, S. Usuda et al., J. Nucl. Sci. Technol., 40 (1), p. 49-56 (2003).
- 10) "Low Energy Gamma- and X-ray Measurements by means of Compton Suppression Technique for Safeguards Environmental Samples", K. Yasuda, M. Mori, Y. Miyamoto, M. Magara, S. Sakurai, S. Usuda, J. Nucl. Sci. Technol., Supplement 3, p. 576-578 (2002)
- 11) "Radiation Measurement for Safeguards Environmental Samples by Imaging Plate", K. Yasuda, S. Sakurai, H. Gunji, S. Usuda, J. Nucl. Sci. Technol., Supplement 3, p. 552-555 (2002).
- 12) "Challenge to Ultra-trace Analytical Techniques of Nuclear Materials in Environmental Samples for Safeguards at JAERI: Methodologies for Physical and Chemical Form Estimation", S. Usuda, K. Yasuda et al., Intern. J. Environ. Anal. Chem., 86(9), p. 663-675 (2006).
- 13) "Geographical Distribution of Plutonium Derived from the Atomic Bomb in Eastern Area of Nagasaki", Y. Saito-Kokubu, K. Yasuda, M. Magara, Y. Miyamoto, S. Sakurai, S. Usuda, H. Yamazaki, S. Yoshikawa, J. Radioanal. Nucl. Chem. (Proceedings of APSORC), accepted.
- 14) "Plutonium Isotopes Derived from Nagasaki Atomic Bomb in the Sediment of Nishiyama Reservoir at Nagasaki, Japan", Y. Saito-Kokubu, F. Esaka, K. Yasuda et al., Appl. Radiat. Isot., 65(4), p. 465-468 (2007).

## 学位論文審査結果の要旨

核兵器不拡散条約に基づく保障措置検査を可能にするため、ウランやプルトニウムなどの核物質の測定が必要である。本研究はこのような保障措置に要求される非破壊核物質放射能測定や in-situ 測定を高感度で効率的にする放射線計測法に関するものである。

本論文提出者は、核燃料再処理工場のプロセス溶液中に含まれる核燃料の出入り管理を目的として、回転ドラム式  $\alpha$  モニターに適用できる非接液型ホスウィッチ検出器と、グローブボックス内の配管や貯槽タンクに直接取り付けられる接液型ホスウィッチ検出器の開発を含む計測法の改良を行った。前者の特長は、 $\alpha$  核種測定に限定された従来法に対して、 $\beta(\gamma)$  核種を含めた同時かつ独立した非破壊測定を単一の検出器で可能とした。また、後者ではマルチパラメータ法を利用し、従来では困難であった熱・速中性子の弁別が可能となった。これらの手法の適用により、保障措置上の近実時間モニタリングの実施に加えて、再処理工場などの運転管理や臨界安全管理などにも広く適用が期待できる。

以上の研究成果について、本審査委員会は、2月6日に第一回審査委員会を開催し、2月7日の公聴会後に第二回審査委員会を開催し、主任指導教員の意見も参考にして協議を行った。その結果、本研究で得られた技術は、保障措置への対応だけでなく、環境放射能研究や物質動態に注目する地球化学においても非常に意義深いものと考えられる。また、本論文提出者は、すでに本論文に関係した多数の研究業績を有している。よって本論文は博士(理学)の学位授与に値すると評価し、合格と判定した。